マイクログルーブを付与する液水排除機構による固体高分子形燃料電池の
発電特性向上是澤 亮^{*1}, 宇高 義郎^{*2}Improvement of performance of polymer electrolyte fuel cell due to addition of micro-grooves
as water removal mechanismRyo KORESAWA^{*1} and Yoshio UTAKA^{*2}^{*1} Graduate School of Engineering, Yokohama National University
79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan^{*2} Faculty of Engineering, Yokohama National University
79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

Received 19 October 2014

Abstract

Although polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) have become commercially available, many problems remain to further improve the performance of PEFC and to popularize PEFCs. Water management in PEFC is closely related to cell performance. At high current density, generated water accumulates in gas diffusion layer and in gas channels of cathode, and the excessive water obstructs oxygen transport. The cell performance greatly decreases by blocking the oxygen transport. In order to improve the cell performance, it is necessary to remove effectively the generated water. In this study, to improve the water management in gas channels, novel gas channel with micro-grooves, which are manufactured inside gas channel walls, is adopted. The generated water from gas diffusion layer is removed through the micro-grooves to opposite-side of gas channel by the forces of capillary and shearing generated by air flow. The performance of the PEFC with and without micro-grooves was examined in various experimental conditions. Therefore, the cell performance was examined by changing the cell temperature, relative humidity of gas and air velocity. As the result, it was shown that the PEFC with micro-grooves showed higher performance than the conventional PEFC without grooves. Especially, the value of maximum current density was increased by about 23% when air velocity is 8.0m/s.

Key words : Polymer electrolyte fuel cell, Micro-grooves, Water management, Flooding, Gas channel

1. 緒 言

固体高分子形燃料電池 (PEFC) の発電性能向上のためには, セル内部の水管理が重要である. 特に, 高電流密度域においては, 発電反応による生成水の量が多くなり, カソードでは, 液水がガス拡散層 (GDL) やガスチャンネル内に滞留し, 酸素の拡散を妨げ, 発電性能が低下する. このため, 過剰な液水の排除が必要となる.

従来から PEFC セル内部の水分量のコントロールのため, セル内部, 特に生成水の影響を受けやすいカソード側の保湿性の向上や排水性の向上が試みられている. 具体的には, GDL やセパレータのガス流路に対する表面処理又は加工を行うことでセル性能向上の検討がなされている. 例えば, GDL に関する研究においては, 撥水材である polytetrafluoroethylene (PTFE) や fluorinated ethylene propylene (FEP) を用いて GDL の撥水処理を行った研究(Cho and Mench, 2010, Lim and Wang, 2004, Moreira, et al., 2003, Park, et al., 2004)や, マイクロポーラス層 (MPL) の有無や塗布量(Atiyeh, et al., 2007, Park, et al., 2006, Qi and Kaufman, 2002), MPL 中の撥水材や親水材の成分比(Kitahara, et al., 2010, Park, et al., 2008, Velayutham, 2011)によるセル性能への影響も検証されている. これら, GDL

No.14-00537 [DOI:10.1299/transjsme.14-00537], J-STAGE Advance Publication date : 18 March, 2015

^{*1} 正員, 横浜国立大学大学院工学府 (〒240-8501 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5)

^{*2} 正員, フェロー, 横浜国立大学大学院工学研究院
E-mail of corresponding author: utaka@ynu.ac.jp

に対する撥水処理や MPL の塗布の他に, GDL に穴を空ける加工(Gerteisen, et al., 2008, Manahan, et al., 2011)やぬれ性の異なる MPL を積層することによる湿分管理が試みられている(Kitahara, et al., 2013, 2014). また, GDL の平面方向にぬれ性分布の付与による液水移動制御を行うことにより酸素拡散促進が提案されている(Koresawa and Utaka, 2014, Utaka, et al., 2011). また, ガス流路に関する研究として, 流路形状の変更などによる PEFC の性能向上に関する検討が行われている. 流路の形状として, 例えば, 並行流路, サーペイン形流路, 対向楕形流路などがあり, これらを複合した流路形状を含め, 様々な流路形状に関する研究がなされている(Choi, et al., 2011, Hsieh, et al., 2006, Li, et al., 2007, Nguyen, 1996, Shimpalee, et al., 2006, Weng, et al., 2006, Wood, et al., 1998, Xu and Zhao, 2007, Yan, et al., 2006, Yan, et al., 2008). これら流路形状に関する研究の他にも, 毛管力による液滴のアクチュエーションを用いた特殊なガスチャネル構造に関する研究(Metz, et al., 2008)やチャネル壁面のぬれ性の影響(Turhan, et al., 2010)に関する研究も行われている.

2. 記号および添え字

記号			
d	マイクログループの幅	mm	θ マイクログループとガス流のなす角度 deg
h	マイクログループの深さ	mm	V セル電圧 V
P	マイクログループのピッチ	-	Q 供給液水量 nL/s $\cdot$ mm ²
添え字			
g	ガスチャネル	ave	平均
1	ガスチャネル内壁面	min	最小
2	ガスチャネル上壁面	max	最大
$I=2.0$	電流密度 2.0A/cm ² 時	$I=4.0$	電流密度 4.0A/cm ² 時

3. 前報の結果と目的

岡部・宇高(岡部, 宇高, 2013)は, GDL 表面への液水の滞留を改善するため, ガス流路内壁の側壁面及び上壁面に, ガス流に対して傾斜角を持つ微小な溝であるマイクログループを設けることによる液水の排水性向上法

Fig. 1 Schematic of water behavior through micro-grooves from GDL. The figures above show the conventional separator, and the figures below show the proposed separator with micro-grooves. The liquid water moves through the micro-grooves due to the forces of capillary and shear of the air flow.

を提案し、その効果を検討した。図 1 に提案の方式におけるガスチャネル内部の液水分布を模式的に示した。図 1(a)のように、通常のカパレータに設けられたガスチャネルでは、生成水の多い条件においては、水の生成により気液二相流が形成され、液水は GDL 表面にも滞留する可能性が考えられる。そのような GDL 表面への液水の滞留を軽減することを目的として、ガスチャネルを流れる空気のせん断力および液水のグループ内の毛管力を利用して、GDL 表面の生成水を GDL の対向壁にマイクログループを通して移動させる。すなわち、図 1(b)に示すように、GDL 表面とセパレータ内壁から構成されるガスチャネル側壁面及び上壁面に、ガス流に対して GDL 面から離れる方向に傾斜角を持つマイクログループを設ける方式を利用し、GDL からガスチャネルへの排水性能の向上が検討された。具体的には、PEFC におけるセパレータと GDL からなるガスチャネル構造、および化学反応による水の生成を模擬したマイクログループを設置したガスチャネル実験装置を作成した。この実験装置は、図 2 のようにガスチャネル内側面と上内壁面に傾斜角をもたせてマイクログループが設置されている。ガスチャネル幅および高さを $d_g = 1.0\text{mm}$ 、ガスチャネル内側面と上内壁面の傾斜方向マイクログループおよび、上壁面中央のグループの幅と深さをそれぞれ、 $d_1 = 0.2\text{mm}$, $h_1 = 0.2\text{mm}$ および、 $d_2 = 0.3\text{mm}$, $h_2 = 0.2\text{mm}$ の矩形断面とした。

Fig. 2 Details of structure of separator with micro-grooves. The micro-grooves with an axis tilted at an angle toward the gas flow direction were arranged inside the side and upper walls of the gas channel.

Fig. 3 Variation of surface water velocity in micro-grooves against distance from gas inlet. The surface velocity of the water was measured in the case of water supply rate $Q_{I=2.0}$ and $Q_{I=4.0}$ (current densities are 2.0 A/cm^2 and 4.0 A/cm^2 , respectively). The surface velocity of the water was positive over total length of about 200 mm in the case of water supply rate $Q_{I=2.0}$.

さらに、グループとガス流方向のなす角度を θ 、ガス流方向のピッチを P とし、 θ を 20, 30 および 45° の 3 通りのマイクログループを用いて検討がなされた。マイクログループを通る液水の挙動を明らかにするため、レーザ誘起蛍光法を用いて、マイクログループを流れる液水表面流速の測定が行われ、図 3 に示すように、通常の PEFC における電流密度より大きな $2.0\text{A}/\text{cm}^2$ に相当する生成水量 $Q_{f=2.0}$ において、マイクログループの傾斜角の影響を検討した。その結果、傾斜角 20° の場合には、マイクログループの実験装置の全長の距離 198mm にわたって正の速度、すなわち GDL から液水が除去される方向の速度を有していることが確認された。したがって、実機寸法を考慮した全長が約 200mm での有効性が確認され、燃料電池への実用的な適用への可能性が示された。

しかし、このような検討は PEFC のガスチャネルを模擬した液水移動の効果だけに着目しており、液水生成を伴いながら種々の影響の複合する実際の PEFC において、実際の性能にどの程度の影響をもつのか、その有効性の確認が必要と考えられる。したがって、本研究では、岡部・宇高(岡部, 宇高, 2013)の提案したマイクログループの構造を実際の PEFC に適用し、排水性の向上による PEFC の発電特性の向上の可能性を実証することを目的としている。

4. 実験装置および方法

図 4 に、実験装置系全体の概要を示す。供給ガスは、アノードには純水素、カソードには空気（窒素約 78%、酸素約 21%、アルゴン約 1%）を、それぞれボンベからマスフローコントローラに送り、一定流量に調整した後、加湿器で加湿して PEFC へ供給した。加湿器において、供給ガスを飽和させた後、PEFC へ送っている。このため、加湿器から PEFC までの配管において、温度低下による凝縮を起こさないように、配管を加熱するとともに断熱材で保温した。また、PEFC 本体は所定の温度で運転するため、恒温水槽とアノード、カソードの両セパレータを接続し恒温水を通すことで温度管理を行った。PEFC の性能評価には、データロガー、電子負荷装置および LCR メータを用いた。電子負荷装置を用いて、PEFC に負荷する電流値をステップ状に変化させた状態でデータロガーによりセル電圧を測定し、電流電圧特性を得るとともに、LCR メータを用いて各電流密度におけるセル抵抗を計測した。

図 5 に PEFC の構成を示す。本研究では、マイクログループの有無による発電性能の違いを検討するため、実機への適用を考慮したガスチャネルが長いセパレータを製作した。ガスチャネルは、幅および深さ 1mm、長さ

Fig. 4 Schematic of experimental system. Hydrogen gas and air were humidified in a hot water chamber and supplied to the anode and cathode, respectively. The temperatures of both side separators were controlled using water from constant-temperature bath.

Fig. 5 Polymer electrolyte fuel cell apparatus. The PEFC was composed of separators, gas diffusion layers, gaskets, catalyst layers and polymer electrolyte membrane. The separators have eleven parallel gas channels, and reaction area is 42 cm^2 ($21 \text{ mm} \times 200 \text{ mm}$).

Fig. 6 Schematic of gas channel with micro-grooves. The micro-grooves with tilt angle of 20° to the air flow were arranged at both side and upper walls. The width and depth of microgrooves were 0.2 mm.

200mmの矩形断面流路で、11本の並行流路となっている。また、MEAの反応面積は $21\text{mm} \times 400\text{mm}$ の 42cm^2 で、GDLは、カーボンペーパー（東レ製 TGP-H-060）に撥水処理を行い、MPLを塗布したものを用いた。ガスケットは、アノード側にはシリコンゴムシートを、カソード側にはシリコンスポンジシートを用いた。

セルの締付において、電極部分（GDLの部分）に圧力を適切に加える必要がある。GDLやガスケットの厚さの不整合あるいは硬さによっては、反応面積部分に圧力がかかりにくく、圧力がガスケットに分散することがある。そこで本研究では、比較的柔らかく潰れやすいシリコンスポンジをガスケットとして採用し、主要な締め付け力が電極部分に加わるように材質を選定した。すなわち、シリコンスポンジのみをセパレータ間に挿入した場合と、MPL付GDLのみをセパレータ間に挿入した場合で、所定の締め付け圧に対する厚さの変化を実験的に計測し、シリコンスポンジがMPL付GDLの厚さまで潰れたときのシリコンスポンジにかかる荷重を、セルの全締め付け荷重から差し引き、差し引いた荷重を電極部分にかかる荷重とした。本研究では、電極部分にかかる荷重を電極面積で除した値を締め付け圧とした。また、ガスケットと電極部分への荷重の比率は、例えば締め付け圧が 0.96MPa

Table 1 Experimental conditions

Flow design	Parallel
Gas channel width mm	1
Gas channel depth mm	1
Rib width mm	1
Active electrode area (geometric) cm ²	2.1×20
Clamping pressure MPa	0.96
Cell temperature °C	50, 70 , 80, 90
Relative humidity %	20, 50, 70 , 100
Gas velocity (flow rate)	
Hydrogen m/s (mL/min)	1.1 (732)
Hydrogen stoichiometry	1.15
Air m/s (mL/min)	5.0 (3300), 6.0 (3960) , 7.0 (4620), 8.0 (5280)
Air stoichiometry	5.0m/s:2.17, 6.0m/s:2.60, 7.0m/s:3.04, 8.0m/s:3.47

のとき、ガスケットのシリコーンスポンジには全荷重の約 11%, 電極部分には全荷重の約 89%となる。なお、PEFC の締付圧を決定するため、セルを締め付けるボルト 18 本全てにばねを挿入し、各ボルトの軸力をばね定数とたわみ量から決定し、締付圧を調整した。したがって、5.1 に結果を示すように、セル性能に比較的大きな影響を与える電極部分の締付圧を、ガスケット部にかかる締め付け力の割合を可能な限り減少させることによって十分に正確に規定できるような構造とした。

マイクログループを有するガスチャネル構造を図 6 に示す。マイクログループ付ガスチャネルの構造は、リブ側面および天井部に、傾斜角 20 度、幅および深さ 0.2mm の矩形断面溝を、グループと垂直方向に 0.4mm 間隔に設けた構造となっている。空気流れ方向の上流側では生成された液水の滞留が少ないことを考慮して、入り口から 50mm 以後の部分にマイクログループを設定した。なお、マイクログループ付ガスチャネル構造を有するセパレータは、カソードのみに用い、アノードには、マイクログループを配置していない通常の並行流路のセパレータを用いた。また、セパレータの素材は真鍮で、リブ部分とチャネル部分を別々に作成し、セパレータとリブをそれぞれ金めっきした後に組み合わせた。なお、この金めっき面は水に対してぬれ性（接触角：約 45 度）を示すことを確認した。

実験条件を表 1 に示す。マイクログループ付 PEFC の性能を評価するため、セル温度、供給ガスの相対湿度（アノード、カソード共に同じ相対湿度）、供給ガス（空気）の流速を変化させて実験を行った。表 1 中の太字で示される基準とする実験条件として、セル温度 70°C、相対湿度 70%、空気流速 6.0m/s を設定し、変化させるパラメータ以外は基準の条件として実験を行った。なおガス流速は、加湿前の空気流量から求めた。

5. 実験結果および考察

5・1 PEFC の締付圧がセル性能におよぼす影響

PEFC は締付圧によって発電特性が大きく変化する(Chang, et al., 2007, Lee, et al., 1999, Ous and Arcoumanis, 2007)ことから、本研究においても、適切な締付圧を決定する必要がある。発電特性に対する締付圧の影響について検討するため、基準の実験条件であるセル温度 70°C、相対湿度 70%、空気流速 6.0m/s で、締付圧のみを変化させて実験を行い、締付圧がセル性能におよぼす影響を検討した。実験結果を図 7 に示す。図 7 から、約 1MPa までは締付圧が増すほど電流密度の最大値が大きくなり、約 1MPa を境に小さくなることが分かる。この結果から、掃引可能な電流密度が最大となる 0.96MPa を基準の締付圧として設定した。セル温度の影響、供給ガスの相対湿度の影響、空気流速の影響を検討する際の締付圧は、この基準値を条件として与えた。

Fig. 7 Effect of clamping pressure on cell performance. The clamping pressure was changed from 0.29 MPa to 5.00 MPa under the experimental conditions of the cell temperature of 70 °C, relative humidity of 70 %, and air flow velocity of 6.0 m/s. The clamping pressure of 0.96 MPa, at which maximum current density is obtained, was set as the standard condition.

Fig. 8 Effect of cell temperature on cell performance. Two kinds of PEFCs with and without micro-grooves were used, and the cell temperature was changed from 50 °C to 90 °C. The power density reached maximum at the cell temperature of 70 °C, and cell performances were enhanced by adding the micro-grooves.

5・2 セル温度がセル性能におよぼす影響

図 8 にセル温度を 50°C から 90°C まで変化させた場合の実験結果を示す。また、図 8 (a) は電流電圧特性を、図 8 (b) は出力密度の特性を示しており、カソード側のセパレータにマイクログループを設置した場合と、マイクログループを設置していない通常の場合とを比較して示した。

図 8 から、セル温度に対する定性的な傾向は、マイクログループの有無に関わらず類似しており、セル温度が 70°C で出力密度が最大となり、50°C のとき、あるいは 80°C 以上のときには出力密度が小さくなるのが分かる。ま

た、マイクログループの付加により電流密度の限界が増大しており、濃度過電圧の影響を軽減できていることが分かる。例えば図 8(a)において、セル温度が 70°C のとき、出力電圧が濃度過電圧により急落して約 0.1V となるときの電流密度は、マイクログループが無い場合では $1500\text{mA}/\text{cm}^2$ であるが、マイクログループを付加することにより $1700\text{mA}/\text{cm}^2$ と、より高電流密度域側まで掃引できることが分かる。また、図 8(b)からは、マイクログループを付加させた場合には、出力密度の最大値は電流密度の大きい側に移動し、その値も増加することが見て取れる。これは、岡部・宇高(岡部, 宇高, 2013)が模擬装置を用いて示したように、マイクログループによる GDL 表面に滞留する液水の排出性の向上によるものと考えられる。

5・3 供給ガスの相対湿度がセル性能におよぼす影響

図 9, 10 に供給ガスの相対湿度を 20 から 100 % まで変化させた場合の実験結果を示す。また、図 9 (a) は電流電圧特性を、図 9 (b) は出力密度の特性を示しており、カソード側のセパレータにマイクログループを設置した場合と、マイクログループを設置していない通常の場合とを比較して示した。相対湿度の影響についても、マイクログループの有無に関わらず同様の定性的な傾向を示し、相対湿度の変化に対して、電流密度および出力密度には適切な条件があることが分かる。すなわち、相対湿度が 20% から増加するに従って出力は増大してゆき、約 70% で最大となる。さらに大きな 100% では、出力は減少しており、これはガスを水蒸気が飽和した状態で供給しているため、濃度過電圧の影響を受けやすいと考えられる。図 10 は、相対湿度を変化させた場合のセル抵抗の変化を示している。電流密度が小さい時のセル抵抗は、相対湿度が高くなるにつれて小さくなっている。これは、生成水の量が少ない電流密度が小さい領域では、高分子膜が十分な湿分を含んでいないため、高分子膜のプロトン伝導性が低くなり、セル抵抗が高くなると考えられる。特に、相対湿度が 20% の場合はプロトン伝導性の低下が顕著で、図 9 に示されているようなセル性能の大幅な低下につながったと考えられる。また、相対湿度が 20% のときを除き、セル温度の影響と同様に、マイクログループ付の場合のセル性能の方が高いことが分かる。比較的電流密度の小さい領域において、マイクログループ付のセルの性能がグループのない場合に比べて若干低くなっているのは、排水性の向上によって高分子膜の乾燥を促進し、プロトン伝導性を低下させたためと考えられる。

Fig. 9 Effect of relative humidity on cell performance. Two kinds of PEMFCs with and without micro-grooves were used, and the relative humidity of the supply gases was changed from 20 % to 100 %. The power density reached maximum at the relative humidity of 70 %, and cell performances under high humidity conditions were enhanced by adding the micro-grooves.

Fig. 10 Variation of cell resistance with relative humidity. The cell resistance decreases with increasing relative humidity from 20 % to 100 % in the range of lower current density.

5・4 カソード側供給ガスの空気流速がセル性能におよぼす影響

図 11 に空気流速を 5.0 から 8.0 m/s まで変化させた場合の実験結果を示す。また、図 11 (a)は電流電圧特性を、図 11(b)は出力密度の特性を示しており、カソード側のセパレータにマイクログループを設置した場合と、マイクログループを設置していない通常の場合とを比較して示した。空気流速の影響についても、マイクログループの有無に関わらず定性的には同様の傾向を示し、流速の増加に伴い、電流密度および出力密度の最大値が高くなることが分かる。マイクログループが付加されていない通常のセパレータでは、空気流速を変化させても出力変化

Fig. 11 Effect of air velocity on cell performance. Two kinds of PEFCs with and without micro-grooves were used, and the air velocity was changed from 5.0 m/s to 8.0 m/s. The cell performances under each condition were enhanced by adding the micro-grooves.

は比較的小さいことが分かる。しかしながら、マイクログループの付加されていない場合に比べて、グループ付のセルにおいては空気流速の影響がより顕著に現れ、空気流速の増大による出力の増加傾向が大きいことを示している。これは、空気流速の増加は空気のせん断力による液水の移動効果を増加させ、マイクログループによる排水性が向上したためと考えられる。特に、空気流速が 8.0m/s のときには、最大の電流密度は、マイクログループの付加により通常の PEFC の 1500mA/cm² から 1850mA/cm² へと約 23% 向上し、最大の出力密度は、590mW/cm² から 632 mW/cm² と約 7% 向上した。

5・5 マイクログループを付加した場合と付加していない場合の電圧変動の比較

マイクログループにより液水を素早く移動させることが可能なことから、マイクログループには GDL 上の液水の存在に起因する出力変動を減少させる効果が期待できる。その効果の検証のため、マイクログループ付与の有無のそれぞれ場合における起動からの過渡的なセル電圧の出力変化を図 12 に比較して示す。条件は基準値、すなわち、締付圧約 1MPa、セル温度 70°C、相対湿度 70%、水素流速約 1m/s、空気流速 6m/s とした。図 12(a)は実験結果の全電流密度の範囲を示しており、図 12(b)は濃度過電圧の影響を受けやすい電流密度が高い領域である 1100-1500mA/cm² のときのセル電圧変化を示している。図 12(a)から、低電流密度域では、セル電圧の変化には大きな違いが見られないことが分かる。図 12(b)から 1400mA/cm² 程度以上の高電流密度域では、同じ電流密度の場合を比較すると、マイクログループの付与によりセル電圧の変動が大幅に抑えられていることが分かる。マイクログループを付加した場合とマイクログループを付加していない通常のセパレータの場合のセル電圧の変動率を図 13 示す。図 13 は各電流密度における平均電圧からの変動を、エラーバーを用いて示した。図 13 における変動率は、所定の電流密度における平均のセル電圧 V_{ave} 、最小のセル電圧 V_{min} 、最大のセル電圧 V_{max} から、所定の電流密度における最大の変動率と最小の変動率を示している。すなわち、最小の変動率は $(V_{min} - V_{ave}) / V_{ave} \times 100[\%]$ で、最小電圧と平均電圧との差の割合、最大の変動率は $(V_{max} - V_{ave}) / V_{ave} \times 100[\%]$ で、最大電圧と平均電圧の差の割合を示している。最小電圧と平均電圧との差、および最大電圧と平均電圧の差が小さければ、所定の電流密度におけるセル電圧が安定である示している。この結果から、マイクログループを付加した場合は、通常のセパレータ構造と比べて、セル電圧の変動は小さく、安定性が高いことが分かる。これは PEFC の実際の運転状況におけるガス流路内部の非定常的な液水の挙動をマイクログループにより素早く安定させることができると考えられるためである。すなわち、チャンネル内空気流によるせん断力には、GDL 対向壁面などへ付着あるいは滞留する液水をチャンネル下流へ、またグループ内の液水をグループ軸方向へ移動させる作用がある。また、空気流の作用によるマイクログループ内の液水減少を補うように、余剰な液水は毛管力によりマイクログループへ移動する。それら

Fig. 12 Variation of cell voltage with step-wise changes in current density. The transient variations of cell voltage with and without the micro-grooves and the variation of current density were plotted. The fluctuation of the cell voltage was suppressed remarkably by addition of the micro-grooves.

Fig. 13 The ratios of voltage fluctuation to average voltage for the PEFCs with and without micro-grooves were shown. The voltage fluctuations are defined as $(V_{\min} - V_{\text{ave}})/V_{\text{ave}} \times 100 [\%]$ and $(V_{\max} - V_{\text{ave}})/V_{\text{ave}} \times 100 [\%]$, where V_{ave} is the average cell voltage, $V_{\min}$ is the minimum cell voltage, and $V_{\max}$ is the maximum cell voltage. The cell voltage was stabilized remarkably by the addition of the micro-grooves.

の複合作用により、比較的ぬれやすい壁面に付着した GDL 上の液水は、マイクログループを通して GDL 対向面側に素早く移動する。したがって、マイクログループの存在により GDL 上の液水の滞留が防止され、その結果として酸素拡散の阻害要因の減少により、出力の安定性が向上したものと考えられる。

6. 結 論

既報においてセパレータガス流路内の排水特性の向上を目的として提案したマイクログループの構造を、200mm の有効長をもつ実際の PEFC のガス流路に適用することで、セル性能の向上を検討した結果、以下の結論が得られた。

- (1) マイクログループを付与したガス流路を用いることにより濃度過電圧の影響を軽減し、電流密度および出力密度の最大値を向上させることができることを示した。特に、流路内の空気流速の増大は、マイクログループによる排水性を向上させるため、空気流速の増加がより効果的であることが分かった。例えば、空気流速が 8.0m/s のときには、PEFC の最大電流密度および最大出力密度は、マイクログループの付加によりそれぞれ約 23% および約 7% 向上した。
- (2) マイクログループを付与したガス流路を用いることにより、ガス流路内の液水を速やかに移動させることが可能なため、セル電圧の生成水に起因する変動を大幅に低減させ、セル出力の安定性を向上させることを示した。

謝 辞

本研究の一部に、日本学術振興会科学研究費補助金（基盤研究(B)23360097）および科学技術振興機構の援助を受けた。ここに謝意を表す。

文 献

Atiyeh, H. K., Karan, K., Peppley, B., Phoenix, A., Halliop, E. and Pharoah, J., Experimental investigation of the role of a microporous layer on the water transport and performance of a PEM fuel cell, Journal of Power Sources, Vol. 170, No.1 (2007), pp. 111-121.

- Chang, W.R., Hwang, J.J., Weng, F.B. and Chan, S.H., Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 166, No.1 (2007), pp. 149-154.
- Cho, K. T. and Mench, M. M., Effect of material properties on evaporative water removal from polymer electrolyte fuel cell diffusion media, *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No.19 (2010), pp. 6748-6757.
- Choi, K. S., Kim, H. M. and Moon, S. M., An experimental study on the enhancement of the water balance, electrochemical reaction and power density of the polymer electrolyte fuel cell by under-rib convection, *Electrochemistry Communications*, Vol. 13, No.12 (2011), pp. 1387-1390.
- Gerteisen, D., Heilmann, T. and Ziegler, C., Enhancing liquid water transport by laser perforation of a GDL in a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 177, No.2 (2008), pp. 348-354.
- Hsieh, S. S., Yang, S. H. and Feng, C. L., Characterization of the operational parameters of a H₂/air micro PEMFC with different flow fields by impedance spectroscopy, *Journal of Power Sources*, Vol. 162, No.1 (2006), pp. 262-270.
- Lee, W. K., Ho, C. H., Van Zee, J.W. and Murthy, M., The effects of compression and gas diffusion layers on the performance of a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 84, No.1 (1999), pp. 45-51.
- Li, X., Sabir, I. and Park, J., A flow channel design procedure for PEM fuel cells with effective water removal, *Journal of Power Sources*, Vol. 163, No.2 (2007), pp. 933-942.
- Lim, C. and Wang, C.Y., Effects of hydrophobic polymer content in GDL on power performance of a PEM fuel cell, *Electrochimica Acta*, Vol. 49, No.24 (2004), pp. 4149-4156.
- Manahan, M.P., Hatzell, M.C., Kumbur, E.C. and Mench, M.M., Laser perforated fuel cell diffusion media. Part I: Related changes in performance and water content, *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No.13 (2011), pp. 5573-5582.
- Moreira, J., Ocampo, A.L., Sebastian, P. J., Smit, M. A., Salazar, M.D., del Angel, P., Montoya, J.A., Perez, R. and Martinez, L., Influence of the hydrophobic material content in the gas diffusion electrodes on the performance of a PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 28, No.6 (2003), pp. 625-627.
- Park, G. G., Sohn, Y. J., Yang, T. H., Yoon, Y. G., Lee, W. Y. and Kim, C. S., Effect of PTFE contents in the gas diffusion media on the performance of PEMFC, *Journal of Power Sources*, Vol. 131, No.1-2 (2004), pp. 182-187.
- Park, S., Lee, J. W. and Popov, B. N., Effect of carbon loading in microporous layer on PEM fuel cell performance, *Journal of Power Sources*, Vol. 163, No.1 (2006), pp. 357-363.
- Park, S., Lee, J. W. and Popov, B. N., Effect of PTFE content in microporous layer on water management in PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 177, No.2 (2008), pp. 457-463.
- Qi, Z. and Kaufman, A., Improvement of water management by a microporous sublayer for PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 109, No.1 (2002), pp. 38-46.
- Kitahara, T., Konomi, T. and Nakajima, H., Microporous layer coated gas diffusion layers for enhanced performance of polymer electrolyte fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No.8 (2010), pp. 2202-2211.
- Kitahara, T., Nakajima, H., Inamoto, M. and Morishita, M., Novel hydrophilic and hydrophobic double microporous layer coated gas diffusion layer to enhance performance of polymer electrolyte fuel cells under both low and high humidity, *Journal of Power Sources*, Vol. 234 (2013), pp. 129-138.
- Kitahara, T., Nakajima, H., Inamoto, M. and Shinto, K., Triple microporous layer coated gas diffusion layer for performance enhancement of polymer electrolyte fuel cells under both low and high humidity conditions, *Journal of Power Sources*, Vol. 248 (2014), pp. 1256-1263.
- Koresawa, R. and Utaka, Y., Improvement of oxygen diffusion characteristic in gas diffusion layer with planar-distributed wettability for polymer electrolyte fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 271 (2014), pp. 16-24.
- Metz, T., Paust, N., Muller, C., Zengerle, R. and Koltay, P., Passive water removal in fuel cells by capillary droplet actuation, *Sensors and Actuators A: Physical*, Vol. 143, No.1 (2008), pp. 49-57.
- Nguyen, T. V., Gas Distributor Design for Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells, *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 143, No.5 (1996), pp. L103-L105.
- 岡部晃, 宇高義郎, 固体高分子形燃料電池における壁面傾斜マイクログループを用いたガス拡散層からガスチャネルへの排水性向上, *日本機械学会論文集 B 編*, Vol.79, No.805 (2013), pp.1866-1874.
- Ous, T. and Arcoumanis, C., Effect of compressive force on the performance of a proton exchange membrane fuel cell, *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science*, Vol. 221, No.9 (2007), pp.1067-1074.
- Shimpalee, S., Greenway, S. and Van Zee, J.W., The impact of channel path length on PEMFC flow-field design, *Journal of Power Sources*, Vol. 160, No.1 (2006), pp. 398-406.

- Turhan, A., Kim, S., Hatzell, M. and Mench, M. M., Impact of channel wall hydrophobicity on through-plane water distribution and flooding behavior in a polymer electrolyte fuel cell, *Electrochimica Acta*, Vol. 55, No.8 (2010), pp. 2734-2745.
- Utaka, Y., Hirose, I. and Tasaki, Y., Characteristics of oxygen diffusivity and water distribution by X-ray radiography in microporous media in alternate porous layers of different wettability for moisture control in gas diffusion layer of PEFC, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, No.15 (2011), pp. 9128-9138.
- Velayutham, G., Effect of micro-layer PTFE on the performance of PEM fuel cell electrodes, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, No.22 (2011), pp. 14845-14850.
- Weng, F. B., Su, A., Hsu, C. Y. and Lee, C. Y., Study of water-flooding behaviour in cathode channel of a transparent proton-exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 157, No.2 (2006), pp. 674-680.
- Wood III, D. L., Yi, J. S. and Nguyen, T. V., Effect of direct liquid water injection and interdigitated flow field on the performance of proton exchange membrane fuel cells, *Electrochimica Acta*, Vol. 43, No.24 (1998), pp. 3795-3809.
- Xu, C. and Zhao, T.S., A new flow field design for polymer electrolyte-based fuel cells, *Electrochemistry Communications*, Vol. 9, No.3 (2007), pp. 497-503.
- Yan, W. M., Yang, C. H., Soong, C. Y., Chen, F. and Mei, S. C., Experimental studies on optimal operating conditions for different flow field designs of PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 160, No.1 (2006), pp. 284-292.
- Yan, W. M., Li, H. Y., Chiu, P. C. and Wang, X. D., Effects of serpentine flow field with outlet channel contraction on cell performance of proton exchange membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 178, No.1 (2008), pp. 174-180.

References

- Atiyeh, H. K., Karan, K., Peppley, B., Phoenix, A., Halliop, E. and Pharoah, J., Experimental investigation of the role of a microporous layer on the water transport and performance of a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 170, No.1 (2007), pp. 111-121.
- Chang, W.R., Hwang, J.J., Weng, F.B. and Chan, S.H., Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 166, No.1 (2007), pp. 149-154.
- Cho, K. T. and Mench, M. M., Effect of material properties on evaporative water removal from polymer electrolyte fuel cell diffusion media, *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No.19 (2010), pp. 6748-6757.
- Choi, K. S., Kim, H. M. and Moon, S. M., An experimental study on the enhancement of the water balance, electrochemical reaction and power density of the polymer electrolyte fuel cell by under-rib convection, *Electrochemistry Communications*, Vol. 13, No.12 (2011), pp. 1387-1390.
- Gerteisen, D., Heilmann, T. and Ziegler, C., Enhancing liquid water transport by laser perforation of a GDL in a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 177, No.2 (2008), pp. 348-354.
- Hsieh, S. S., Yang, S. H. and Feng, C. L., Characterization of the operational parameters of a H₂/air micro PEMFC with different flow fields by impedance spectroscopy, *Journal of Power Sources*, Vol. 162, No.1 (2006), pp. 262-270.
- Lee, W. K., Ho, C. H., Van Zee, J.W. and Murthy, M., The effects of compression and gas diffusion layers on the performance of a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 84, No.1 (1999), pp. 45-51.
- Li, X., Sabir, I. and Park, J., A flow channel design procedure for PEM fuel cells with effective water removal, *Journal of Power Sources*, Vol. 163, No.2 (2007), pp. 933-942.
- Lim, C. and Wang, C.Y., Effects of hydrophobic polymer content in GDL on power performance of a PEM fuel cell, *Electrochimica Acta*, Vol. 49, No.24 (2004), pp. 4149-4156.
- Manahan, M.P., Hatzell, M.C., Kumbur, E.C. and Mench, M.M., Laser perforated fuel cell diffusion media. Part I: Related changes in performance and water content, *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No.13 (2011), pp. 5573-5582.
- Moreira, J., Ocampo, A.L., Sebastian, P. J., Smit, M. A., Salazar, M.D., del Angel, P., Montoya, J.A., Perez, R. and Martinez, L., Influence of the hydrophobic material content in the gas diffusion electrodes on the performance of a PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 28, No.6 (2003), pp. 625-627.
- Park, G. G., Sohn, Y. J., Yang, T. H., Yoon, Y. G., Lee, W. Y. and Kim, C. S., Effect of PTFE contents in the gas diffusion media on the performance of PEMFC, *Journal of Power Sources*, Vol. 131, No.1-2 (2004), pp. 182-187.
- Park, S., Lee, J. W. and Popov, B. N., Effect of carbon loading in microporous layer on PEM fuel cell performance, *Journal of Power Sources*, Vol. 163, No.1 (2006), pp. 357-363.
- Park, S., Lee, J. W. and Popov, B. N., Effect of PTFE content in microporous layer on water management in PEM fuel cells,

- Journal of Power Sources, Vol. 177, No.2 (2008), pp. 457-463.
- Qi, Z. and Kaufman, A., Improvement of water management by a microporous sublayer for PEM fuel cells, Journal of Power Sources, Vol. 109, No.1 (2002), pp. 38-46.
- Kitahara, T., Konomi, T. and Nakajima, H., Microporous layer coated gas diffusion layers for enhanced performance of polymer electrolyte fuel cells, Journal of Power Sources, Vol. 195, No.8 (2010), pp. 2202-2211.
- Kitahara, T., Nakajima, H., Inamoto, M. and Morishita, M., Novel hydrophilic and hydrophobic double microporous layer coated gas diffusion layer to enhance performance of polymer electrolyte fuel cells under both low and high humidity, Journal of Power Sources, Vol. 234 (2013), pp. 129-138.
- Kitahara, T., Nakajima, H., Inamoto, M. and Shinto, K., Triple microporous layer coated gas diffusion layer for performance enhancement of polymer electrolyte fuel cells under both low and high humidity conditions, Journal of Power Sources, Vol. 248 (2014), pp. 1256-1263.
- Koresawa, R. and Utaka, Y., Improvement of oxygen diffusion characteristic in gas diffusion layer with planar-distributed wettability for polymer electrolyte fuel cell, Journal of Power Sources, Vol. 271 (2014), pp. 16-24.
- Metz, T., Paust, N., Muller, C., Zengerle, R. and Koltay, P., Passive water removal in fuel cells by capillary droplet actuation, Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 143, No.1 (2008), pp. 49-57.
- Nguyen, T. V., Gas Distributor Design for Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, Vol. 143, No.5 (1996), pp. L103-L105.
- Okabe, A. and Utaka, Y., Improvement of Water Discharge from Gas Diffusion Layer to Gas Channel with Obliquely-Directed Micro-Grooves Arranged inside Channel Walls, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 79, No.805 (2013), pp. 1866-1874 (in Japanese).
- Ous, T. and Arcoumanis, C., Effect of compressive force on the performance of a proton exchange membrane fuel cell, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science, Vol. 221, No.9 (2007), pp.1067-1074.
- Shimpalee, S., Greenway, S. and Van Zee, J.W., The impact of channel path length on PEMFC flow-field design, Journal of Power Sources, Vol. 160, No.1 (2006), pp. 398-406.
- Turhan, A., Kim, S., Hatzell, M. and Mench, M. M., Impact of channel wall hydrophobicity on through-plane water distribution and flooding behavior in a polymer electrolyte fuel cell, Electrochimica Acta, Vol. 55, No.8 (2010), pp. 2734-2745.
- Utaka, Y., Hirose, I. and Tasaki, Y., Characteristics of oxygen diffusivity and water distribution by X-ray radiography in microporous media in alternate porous layers of different wettability for moisture control in gas diffusion layer of PEFC, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 36, No.15 (2011), pp. 9128-9138.
- Velayutham, G., Effect of micro-layer PTFE on the performance of PEM fuel cell electrodes, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 36, No.22 (2011), pp. 14845-14850.
- Weng, F. B., Su, A., Hsu, C. Y. and Lee, C. Y., Study of water-flooding behaviour in cathode channel of a transparent proton-exchange membrane fuel cell, Journal of Power Sources, Vol. 157, No.2 (2006), pp. 674-680.
- Wood III, D. L., Yi, J. S. and Nguyen, T. V., Effect of direct liquid water injection and interdigitated flow field on the performance of proton exchange membrane fuel cells, Electrochimica Acta, Vol. 43, No.24 (1998), pp. 3795-3809.
- Xu, C. and Zhao, T.S., A new flow field design for polymer electrolyte-based fuel cells, Electrochemistry Communications, Vol. 9, No.3 (2007), pp. 497-503.
- Yan, W. M., Yang, C. H., Soong, C. Y., Chen, F. and Mei, S. C., Experimental studies on optimal operating conditions for different flow field designs of PEM fuel cells, Journal of Power Sources, Vol. 160, No.1 (2006), pp. 284-292.
- Yan, W. M., Li, H. Y., Chiu, P. C. and Wang, X. D., Effects of serpentine flow field with outlet channel contraction on cell performance of proton exchange membrane fuel cells, Journal of Power Sources, Vol. 178, No.1 (2008), pp. 174-180.